

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2001 年 5 月 10 日 (10.05.2001)

PCT

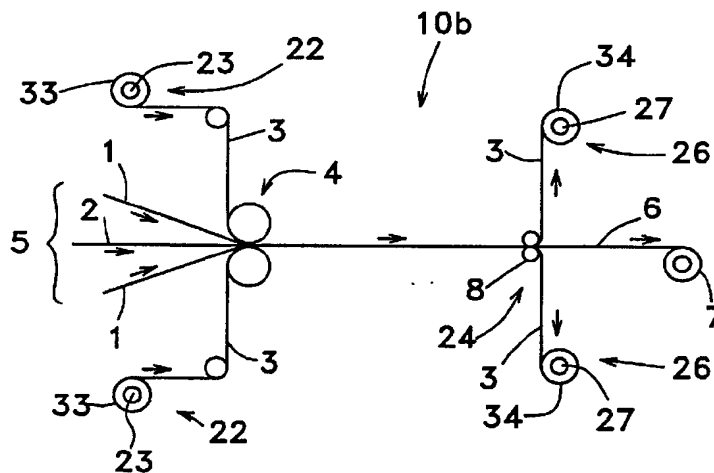
(10) 国際公開番号  
WO 01/32418 A1

- (51) 国際特許分類: **B32B 31/20, 15/08** 特願平 2000-248795  
2000 年 8 月 18 日 (18.08.2000) JP
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/07656 特願平 2000-287552  
2000 年 9 月 21 日 (21.09.2000) JP
- (22) 国際出願日: 2000 年 10 月 30 日 (30.10.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 鐘淵化学工業株式会社 (KANEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒530-0005 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号 Osaka (JP).
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平 11/310720 1999 年 11 月 1 日 (01.11.1999) JP (72) 発明者; および  
特願平 2000-126942 2000 年 4 月 27 日 (27.04.2000) JP (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 長谷直樹 (HASE, Naoki) [JP/JP]; 〒520-0104 滋賀県大津市比叡  
特願平 2000-126943 2000 年 4 月 27 日 (27.04.2000) JP 辻 2-5-8-105 Shiga (JP). 片岡孝介 (KATAOKA, Kosuke) [JP/JP]; 〒520-0113 滋賀県大津市坂本 2-4-64 Shiga (JP). 古谷浩行 (FURUTANI, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒569-1044 大阪府高槻市上土室 1-10-6-412 Osaka (JP). 伏木八州男 (FUSHIKI, Yasuo) [JP/JP]; 〒607-8079 京都府京都市山科区音羽前出町 33-1-702 Kyoto (JP).  
特願平 2000-244905 2000 年 8 月 11 日 (11.08.2000) JP  
特願平 2000-248796 2000 年 8 月 18 日 (18.08.2000) JP

[続葉有]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR MANUFACTURING LAMINATED PLATE

(54) 発明の名称: 積層板の製造方法および製造装置



(57) Abstract: A method of manufacturing a laminated plate suitable for a flexible substrate material which is free from visual defects such as wrinkles and curls produced when a plurality of laminated materials containing thermally fusible laminated materials are formed by sticking these materials to each other by a heating and pressuring forming device, comprising the steps of disposing a thermal resistant protective material between a pressuring surface and the laminated materials, heating and pressuring the materials at a temperature of 200° or higher, and peeling off the protective material from the laminated materials after heated and pressurized materials are cooled, whereby the laminated plate with less nonuniformness due to pressurization, a uniform surface, and a good inter-layer adhesion, and the method and device for manufacturing the laminated plate can be provided; specifically, the heating and pressuring formation is performed by a heating and pressuring forming device having at least a pair of metal rolls.

[続葉有]



WO 01/32418 A1



(74) 代理人: 楠本高義(KUSUMOTO, Takayoshi); 〒520-0832 滋賀県大津市栗津町4番7号 近江鉄道ビル5F 楠本特許事務所 Shiga (JP).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(81) 指定国 (国内): KR, US.

---

(57) 要約:

熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を加熱加圧成形装置で貼り合わせて成形する時に生じるシワ、カール等の外観不良のない、フレキシブル基板材料として好適な積層板の製造方法を提供する。具体的には、加圧面と被積層材料との間に、耐熱性の保護材料を配置して、200℃以上の加熱加圧を行い、加熱加圧された被加工物を冷却後に該保護材料を積層板から剥離する積層板の製造方法を提供する。

又、加圧ムラの少ない、表面が均一で、層間の接着が良好な積層板及びその製造方法及び製造装置を提供する。具体的には、少なくとも1対以上の金属ロールを備えた加熱加圧成形装置によって加熱加圧成形する。

## 明 細 書

### 積層板の製造方法及び製造装置

#### 技術分野

本発明は、加熱加圧成形装置で製造される積層板の製造方法に関する。特には、電子電気機器等に用いられるフレキシブル積層板の製造方法に関する。

#### 背景技術

電子電気機器用印刷回路基板に用いられる積層板には、金属箔が熱硬化性樹脂等の熱硬化型接着剤によって貼付された積層板（以下、熱硬化型の積層板と表す）と、熱可塑性樹脂等の熱融着型接着剤によって貼付された積層板（以下、熱融着型の積層板と表す）がある。

熱硬化型の積層板の製造方法は、従来より種々研究されており、樹脂含浸紙、樹脂含浸ガラス布等と金属箔を多段プレスや真空プレスを用いてプレスし、その後、高温で数時間熱硬化させてリジッド積層板を得る方法や、ロール状の材料を1対の加熱ロールに挟んでラミネートし、その後、高温で数時間熱硬化させてフレキシブル積層板を得る方法、加熱ロールの代わりにダブルベルトプレス装置を用いて熱ラミネートする方法等が実施されている。その際、以下に示す問題を解決する目的で、装置の加圧面と被積層材料との間に保護材料を挟んで加熱加圧成形する場合がある。すなわち、金属箔表面の傷や打痕の発生（特開昭60-109835）や熱ラミネート後の硬化炉における積層板の反りの発生（特開平4-89254）、あるいは樹脂溜まりのある平滑性に乏しい樹脂含浸紙や樹脂含浸ガラス布等により滑らかなラミネート加工が阻害される等の問題が発生する場合に保護材料を用いるときがある。

これら熱硬化型の積層板を製造する場合、加熱加圧成形温度は200℃以下で

ある場合が殆どである。この程度の加熱温度では、被積層材料にかかる熱応力が小さく、熱ラミネート時のシワ等の外観不良は発生しにくい。ところが、熱融着型の積層板を製造する場合、接着層を構成する熱可塑性樹脂のガラス転移温度（ $T_g$ ）以上の温度で加熱加圧を行わなければ熱融着が出来ない。一方、電子電気機器用積層板は、部品実装の過程で高温加熱を受けるので、接着層を構成する熱可塑性樹脂には少なくとも $170^{\circ}\text{C}$ 以上の $T_g$ が求められる。従って、その熱融着のためには $200^{\circ}\text{C}$ 以上の熱ラミネート温度が必要となる。このような高温でのラミネートでは、被積層材料の熱膨張・熱収縮の変化が大きくなり、ラミネート加工された積層体にシワ等の外観不良を生じやすいという問題があった。

一方、この熱硬化型の積層板の接着材料には、一般にエポキシ系、アクリル系等の接着剤が使用されている。しかしながら、最近では、基板特性として、車載システム用の基板として高温下といった劣悪な環境で用いられる耐熱性や、従来の半田に比べて融点が数十 $^{\circ}\text{C}$ 上昇した鉛フリー半田でのハンダリフロー耐性等が要求されており、従来のエポキシ系、アクリル系の接着剤では耐熱性が不十分となってきた。

そこで、耐熱性を兼ね備えたポリイミド系の接着剤を使用した基板が、種々検討されている。

例えば、ポリイミド金属箔積層板の製造方法として、金属箔上にポリイミド前駆体であるポリイミドワニス及び／又はポリアミック酸ワニスを直接塗布・乾燥・キュアする方法が知られている。この方法は、溶液状のワニスを直接、金属箔上に塗布するもので、溶液状であるため金属箔表面の凹凸（プロファイル）に難なく浸透することができ、金属箔とポリイミド層の間には小さな間隙（マイクロボイド）が出来ることなく、線幅が $10 \sim 50 \mu\text{m}$ の回路パターンを切っても問題のないものであった。しかしながらこの方法では、直接塗布・乾燥・キュアした場合、溶媒乾燥時及びキュア時の熱収縮により、ポリイミド金属箔積層体にシワ、波打ち、反り等が発生し、回路基板材料として満足出来るものではなかった

。そこで、シワ、波打ち、反り等のないポリイミド金属積層体の製造方法が提案されている。

例えば、特開平 7-193349 号には、非熱可塑性ポリイミド基材上に熱可塑性ポリイミドワニス及び／又は熱可塑性ポリイミドの前駆体であるポリアミック酸ワニスを直接塗布・乾燥・キュアを行い熱可塑性ポリイミド層を形成し、次いで、熱可塑性ポリイミド層の表面に金属箔を加熱圧着するポリイミド金属積層体の製造方法が開示されている。該方法により得られるポリイミド金属積層体は、シワ、波打ち、カール等の欠陥がなく、金属箔とポリイミド層とのピール強度が十分に強く、回路基板材料として優れたポリイミド金属積層体である。しかしながら、金属箔と熱可塑性ポリイミド層との間に直径 10～50  $\mu\text{m}$  程度のマイクロボイドが存在することがあり、微細な回路パターンを形成する高密度回路基板材料としては必ずしも満足出来るものではなかった。

他方、近年、エレクトロニクス製品の軽量化、小型化、高密度化に伴い、プリント基板の需要が高くなり、特に、絶縁性フィルム上に銅箔回路を形成して成るフレキシブルプリント基板の需要が高まっている。このフレキシブルプリント基板の製造方法としては、一般的には連続的に供給されるポリイミドフィルム等の絶縁性フィルム上に連続的に供給される銅箔を熱硬化性接着剤を用いて連続的に加熱状態で貼合わせ、この銅箔にエッチング等の手段により回路を形成する製造方法や、連続的に供給される耐熱性熱可塑性接着剤があらかじめ上下面に形成されたポリイミドフィルム等の接着フィルムと、連続的に供給される銅箔とを連続的に加熱状態で貼合わせ、この銅箔にエッチング等の手段により回路を形成する製造方法等がある。

このようなフレキシブルプリント基板は携帯電話、携帯型パソコンといったものに使用される高密度実装部品等を実装するため、寸法安定性が強く要求されている。

この寸法安定性は、特開平 2-134241 や特開平 10-126035 に記

載されているようにフレキシブル積層板を製造する際の加工条件が大きく効くことが知られている。たとえば、特開平10-126035には、「このフレキシブルプリント基板は上記製造方法を採用すると張力の影響により、貼合わせ工程の前において、絶縁性フィルムが伸ばされ、この状態で銅箔（銅箔はほとんど伸びない）と貼合わせられる為、エッチング処理をして回路を形成しフレキシブルプリント基板にすると、エッチング処理の際の銅箔の一部の溶出により絶縁性フィルムの伸び歪が開放されて縮む為、フレキシブルプリント基板が縮んでしまうという問題がある。又、ポリイミドフィルムと銅箔とを加熱状態で貼合わせる際に、ポリイミドフィルムの線膨張係数は銅箔の線膨張係数よりも大きい為に、ポリイミドフィルムは銅箔よりも伸ばされた状態で貼合わせられる。よってエッチング処理をして回路を形成しフレキシブルプリント基板にすると、エッチング処理の際の銅箔の一部の溶出によりポリイミドフィルムの伸び歪が開放されて縮む為、フレキシブルプリント基板が縮んでしまうという問題もある。」と記載されている。

しかしながら、この特開平2-134241では、プラズマ処理を施すこと、および、積層を60～120℃の低温度でおこなうこととなっており、プラズマ処理は、製品のコストアップにつながる原因となる問題、プラズマ処理をインラインで行えない、120℃より高い温度で積層する時には効果を発揮しない等の問題があった。

又、特開平10-126035では、50～120℃の低温度で貼り合わせる事となっており、120℃より高い温度で積層する時には効果を発揮しない等の問題があった。

一方、熱ラミネートにより積層板を得る方法については、上述のように、熱ロールラミネート機によるもの、多段プレスや真空プレスを用いてプレスして積層板を得る方法、ロール状の材料をダブルベルトプレス装置を用いて熱ラミネートする方法等が実施されている。

しかしながら、多段プレスや真空プレスは単動でプレスするため、Roll to Rollで行われるような連続ラミネートが出来ない。ダブルベルトプレス装置は連続でラミネートが可能であるが、初期コスト並びにメンテナンス費用等が、単動プレス装置に比較して高くつく。又、ダブルベルトプレス装置のベルトは長尺のスチールベルトの両端を溶接、研磨してエンドレス化したものを、プレスロールを挟んで上下に配置したものであるため、積層材料をラミネートする場合にはベルトの継ぎ目による痕が転写し、その転写部分は貼り合わせが不均一であるため製品として使用出来ないことがある。加えて、プレスロールの圧力はベルトを介して積層材料に伝達されるため、幅方向に厚みムラの大きいベルトでラミネートすると積層材料の接着が不均一になる問題がある。このように、ダブルベルトプレス方式では、ベルトの表面の均一性について十分に配慮しなければならない。

熱ロールラミネート機は、ラミネート温度が100℃程度と比較的低温である熱硬化型樹脂に適用されるので、通常、ゴム-金属ロールもしくはゴム-ゴムロールの構成を有している。この構成は、ゴムの弾性により幅方向に圧カムラなく加圧でき、均一にラミネートすることが出来る。しかしながら、耐熱性を有する熱融着性の被積層材料を使用する場合、ラミネート加工時に250℃以上の高温を要するため、ゴムロールを使用する熱ロールラミネート機は、熱によりゴムが変形し、このような目的のラミネート加工には使用出来ない。

本発明は、高温での熱ラミネート時に生じるシワ・カール等の外観不良がない、フレキシブル基板材料として好適な、熱融着性の被積層材料と金属材料等から成る耐熱性の積層板の製造方法を提供することを目的とする。

又、本発明は、加熱加圧成形時に均一に加熱加圧でき、表面が均一で、層間が良好に接着されている耐熱性フレキシブル積層板の製造方法及び製造装置を提供することを目的とする。

## 発明の開示

本発明の積層板の製造方法の要旨とするところは、熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を加熱加圧成形装置により加熱加圧して貼り合わせる積層板の製造方法であって、該加熱加圧成形装置の加圧面と該複数の被積層材料との間に保護材料を配置し200℃以上の温度で該複数の被積層材料を加熱加圧して貼り合わせ、該保護材料と、貼り合わされた該複数の被積層材料とを軽く密着させておき、貼り合わされた該複数の被積層材料が冷却されてから、該保護材料を、貼り合わされた該複数の被積層材料から剥離することにある。

又、本発明の積層板の製造方法においては、前記複数の積層材料を連続的に貼り合わせ得る。

更に、本発明の積層板の製造方法においては、前記加熱加圧成形装置が、1対若しくは複数対の金属ロールを備えた加熱加圧成形装置であり得る。

更に、本発明の積層板の製造方法においては、前記加熱加圧成形装置が、1対のエンドレススチールベルトを備えたダブルベルトプレス機であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属ロールの直径が200mm以上であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属ロールの真円度が0.05mm以下、かつ円筒度が0.05mm以下、表面粗さが0.01mm以下であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属ロール面長方向の温度差が±10℃以下であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属ロールの表面硬度がHs50以上であり得る。

又、本発明の積層板の製造方法は、前記保護材料の厚みが50μm以上であるものである。

本発明の積層板の製造方法においては、前記保護材料が、ポリイミドフィルム



であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記ポリイミドフィルムが非熱可塑性であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記保護材料が、貼り合わせの温度における引張弾性率が  $490\text{ N/mm}^2$  以上でありかつ  $200^\circ\text{C}$  から  $300^\circ\text{C}$  での線膨張係数が  $100\text{ ppm/}^\circ\text{C}$  以下であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記保護材料が、ロール状に巻かれた長尺シート状形状をなし得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記複数の被積層材料が前記加熱加圧成形装置で加熱加圧される前に、前記保護材料が予備加熱され得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記予備加熱の温度が、加熱加圧の温度以上の温度であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記保護材料が前記加熱加圧成形装置の加熱ロール又はベルトの一部を覆う形で配され、前記予備加熱がなされ得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記保護材料が繰り返し使用され得る。

本発明の積層板の製造方法においては、一対の前記保護材料が、前記複数の被積層材料を挟んで配置され、貼り合わされた該複数の被積層材料を対称面として該一対の保護材料がそれぞれ対称的な角度で剥離され得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記加熱加圧成形装置により貼り合わされる前までの前記熱融着性の被積層材料に作用する張力を、該熱融着性の被積層材料が安定的に直進する必要最低限とし、前記金属材料の張力を該熱融着性の被積層材料の張力の3倍以上となし得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記熱融着性の被積層材料の張力が  $0.1 \sim 3.0\text{ N/mm}^2$  であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記複数の被積層材料のうちの少なく

とも1の被積層材料が、ロール状に巻かれた長尺シート状形状をなし得る。

又、本発明の積層板の製造方法は、前記熱融着性の被積層材料の接着成分が、熱可塑性ポリイミドを50重量%以上含有する樹脂であるものである。

本発明の積層板の製造方法においては、前記熱融着性の被積層材料が、熱可塑性ポリイミドを50重量%以上含有する樹脂から成る単層のフィルムであり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記熱融着性の被積層材料が、非熱可塑性のポリイミドフィルムの片面又は両面に、熱可塑性ポリイミドを50重量%以上含有する樹脂層を有する、複数層のフィルムであり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記熱融着性の被積層材料が、繊維シート基材に、熱可塑性ポリイミドを50重量%以上含有する樹脂を含浸したシートであり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記熱融着性の被積層材料がガラス転移温度170℃以上の耐熱性接着材料であり得る。

又、本発明の積層板の製造方法は、前記複数の被積層材料が金属材料を含むものである。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属材料が、厚みが50  $\mu$ m以下の金属箔であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属箔が、銅、ニッケル、アルミニウム及びステンレススチール並びにそれらの合金からなる群から選ばれた少なくとも一種の金属箔であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属箔が、銅箔であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記熱融着性の被積層材料と前記金属材料が貼り合わされた積層板に対する、該熱融着性の被積層材料と前記金属材料が貼り合わされた積層板から該金属材料を除去後、150℃で30分間加熱し次いで室温に戻したあとの積層板の寸法変化率の絶対値が、MD方向及びTD方向

ともに 0.10%以下であり得る。

本発明の積層板の製造方法においては、前記金属箔の表面あらさの最大高さ（ $R_{max}$ ）が  $15\mu m$ 以下、十点平均あらさ（ $R_z$ ）が  $10\mu m$ 以下であり、かつ中心線平均あらさ（ $R_a$ ）が  $2\mu m$ 以下であり得る。

更に、本発明の積層板の加熱加圧成形装置の要旨とするところは、熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を加熱加圧して貼り合わせる積層板の加熱加圧成形装置であって、 $200^{\circ}C$ 以上の温度で該複数の被積層材料を加熱加圧して貼り合わせる、1対若しくは複数対の金属ロールを備えたことにある。

更に、本発明の積層板の加熱加圧成形装置の要旨とするところは、熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を、該加熱加圧成形装置の加圧面と該複数の被積層材料との間に、該複数の被積層材料が貼り合わされた後に該複数の被積層材料からはがす保護材料を配して加熱加圧して貼り合わせる積層板の加熱加圧成形装置であって、該保護材料を送り出す送り出し手段を備え、該保護材料を剥離する位置に、貼り合わされた該複数の被積層材料に密着する該保護材料に近接して、該保護材料をガイドするガイド手段を備え、該保護材料を引き取る引取り手段を備えたことにある。

本発明の積層板の加熱加圧成形装置においては、前記金属ロールの直径が  $200mm$ 以上であり得る。

本発明の積層板の加熱加圧成形装置においては、前記金属ロールの真円度が  $0.05mm$ 以下、かつ円筒度が  $0.05mm$ 以下、表面粗さが  $0.01mm$ 以下であり得る。

本発明の積層板の加熱加圧成形装置においては、前記金属ロールの面長方向の温度差が  $\pm 10^{\circ}C$ 以下であり得る。

本発明の積層板の加熱加圧成形装置においては、前記金属ロールの表面硬度が  $Hs 50$ 以上であり得る。

## 図面の簡単な説明

第1図(a)、(b)は、本発明にかかる積層板の製造方法を説明するために示される、本発明に用いられる加熱加圧成形装置の側面模式図である。

第2図は、本発明にかかる積層板の製造方法を説明するために示される、本発明に用いられる他の加熱加圧成形装置の側面模式図である。

第3図(a)、(b)は、本発明にかかる積層板の積層板の製造方法において、加熱加圧成形装置の金属ロールと、保護材料との接触状態を説明するための側面模式図である。

第4図は、本発明にかかる、複数対の金属ロールを用いた積層板の加熱加圧成形装置を説明するための側面模式図である。

第5図は、本発明にかかる、金属ロールを用いた積層板の加熱加圧成形装置を説明するための側面模式図である。

## 発明を実施するための最良の形態

本発明者らは、熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料、例えば、熱可塑性ポリイミドと銅箔とを加熱加圧成形装置により200℃以上の温度で貼り合わせてなる積層板の製造方法において、貼り合わせ時に被積層材料の外側に保護材料を配して貼り合わせると、貼り合わせ後の熱可塑性ポリイミドは収縮しようとするが、銅箔の外側に保護材料があるために面方向の動きが抑制され、熱可塑性ポリイミドの動きが制限されて、貼り合わされた積層板にシワが発生しないことを見出し、以下に記述する発明を完成した。

更に、耐熱性を有する熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料、例えば、熱可塑性ポリイミドと銅箔とを加熱加圧成形装置により貼り合わせてなる積層板の製造方法においては、ゴムロールの耐熱温度を超えた高い加熱温度が必要となり、従来のゴムロールを使用するラミネート法は、熱によりゴムロールが劣化し、均一な接着がなされないことに鑑み、一対又は複数対の金属ロールを用いる

耐熱性の積層板の製造方法及び製造装置を見出した。

先ず、シワなどの外観不良の原因を詳しく説明する。例えば、熱ロールラミネート機で銅箔と熱可塑性ポリイミドを貼り合わせる場合、熱ロールラミネート機のプレスロール間を通過し加熱加圧されることで、銅箔と熱可塑性ポリイミドが貼り合わされるが、熱ラミネート時、各被積層材料は熱によって膨張した状態にあり、一般に銅箔の線膨張係数よりも熱可塑性ポリイミドの線膨張係数は大きい。ため、銅箔より面方向に大きく伸びた状態で熱可塑性ポリイミドは銅箔と熱ラミネートされ、逆に、冷却時には熱可塑性ポリイミドは銅箔より面方向に大きく縮む。このため、できた積層板は面方向にシワを生じる。又、加熱加圧直後圧力が開放されても、加熱加圧された材料は熱を保持しており、その温度が熱可塑性ポリイミドの $T_g$ よりも高いために熱可塑性ポリイミドは流動状態にあり、シワの発生を抑止出来ないことも一因となっていると考えられる。

この点を解決するために、本発明の態様においては、熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を加熱装置により貼り合わせて積層板を製造するときに、加熱加圧成形装置の加圧面と複数の被積層材料とのあいだに保護材料を配置し、加熱加圧を行ない、加熱加圧され貼り合わされた被積層材料とそれに軽く密着した保護材料とを冷却後に、その貼り合わされた被積層材料から保護材料を剥離する。ここでいう被積層材料とは、最終的に積層板として一体化される、フィルムのようなシート状又は板状の材料をさし、熱融着性の被積層材料とは、加熱による融着によって被積層材料どうしを接着する機能を有する被積層材料をさす。又、保護材料は積層板を構成する材料ではない。

これにより、耐熱性を有する積層板の製造において、熱融着性の被積層材料の融点が高く、 $200^{\circ}\text{C}$ 以上の加熱加圧を要する場合であっても、シワやソリのない積層板を製造出来る。

図1 (a)、(b) に本発明による積層板の製造における加熱加圧成形装置の一例と、加工の態様を示す。図1 (a)、(b) において、加熱加圧成形装置1

0は、加熱加圧ロールである一対の金属ロール4を備えている。金属ロール4には、被積層材料である接着フィルム2と、その接着フィルム2を両側から挟んで、同じく被積層材料である銅箔1が供給される。被積層材料及び保護フィルム3が、金属ロール4により加熱加圧され、接着フィルム2と銅箔1とが貼り合わされて接着された後、保護フィルム3がはがされ、接着フィルム2と銅箔1とが貼り合わされてなる積層板6が製造され、巻き取り体7として巻き取られる。

又、金属ロール4の下流に剥離補助ロール（ガイド手段）8を設け、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料とそれに軽く密着する保護フィルム3がこの金属ロール4と剥離補助ロール（ガイド手段）8との間を通過するときに自然冷却又は強制冷却され、保護フィルム3に近接し保護フィルム3をガイドする剥離補助ロール（ガイド手段）8から排出されたところで、保護フィルム3がはがされる。強制冷却は、冷風を吹き付ける、或いは低温の物体に接触させる等の手段によることが出来る。

剥離補助ロール8は、保護フィルム3のような保護材料を定位置で剥離させるためにガイドするガイド手段であり、保護材料との接触により従動する従動ロールであってもよい。積極回転するロールであってもよい。固定したロールであってもよい。保護材料をガイドするものであれば、断面が非円形の棒状或いは板状の部材をガイド手段として配してもよい。

本発明の他の態様においては、一対のエンドレススチールベルトを備えるダブルベルトプレス機が用いられる。ダブルベルトプレス機は、例えば図2に示すような構成となっている。図2においてダブルベルトプレス機20は一対のエンドレススチールベルト22を備える。エンドレススチールベルト22には、被積層材料である接着フィルム2と、その接着フィルム2を両側から挟んで、同じく被積層材料である銅箔1が供給される。被積層材料及び保護フィルム3が、エンドレススチールベルト22により加熱加圧され、接着フィルム2と銅箔1とが貼り合わされて接着された後、保護フィルム3がはがされ、接着フィルム2と銅箔1

とが貼り合わされてなる積層板 6 が製造され、巻き取り体 7 として巻き取られる。それぞれのエンドレススチールベルト 2 2 には、エンドレススチールベルト 2 2 を加熱し且つガイドする加熱ガイド 2 6 が配されている。加熱ガイド 2 6 の下流には、エンドレススチールベルト 2 2 を冷却し且つガイドする冷却ガイド 2 8 が配されている。加熱ガイド 2 6 及び冷却ガイド 2 8 は、上下のエンドレススチールベルト 2 2 の間の隙間を小さくしておくように配置され、これにより、被加工物が上下のエンドレススチールベルト 2 2 の間を通過するときに加圧される。又、被加工物は、エンドレススチールベルト 2 2 の加熱ガイド 2 6 により加熱された部分を通過するときに加熱され、冷却された部分を通過するときに冷却される。

エンドレススチールベルト 2 2 の下流に図 1 と同様の目的で剥離補助ロール 8 を設ける。冷却ガイド 2 8 による冷却が充分になされる場合は剥離補助ロール 8 を設けなくともよい。

ダブルベルトプレス機は、この他の態様として、上下のエンドレススチールベルトを一对若しくは複数対のロールで挟んで加熱加圧する方式もある。

なお、本発明においては、被積層材料を一对の保護材料の中間に挟んだ一組の被加工物と、更にもう一組或いはもう複数組の同様の構成の被加工物とをかさねた多重層の被加工物に加熱加圧を行なう態様をとり得る。この場合は、その多重層の被加工物の表裏にそれぞれ位置する保護材料を除いては、保護材料は、加熱加圧成形装置の加圧面に接触せずに加熱加圧加工される。即ち、本発明においては、加熱加圧加工時に配される複数の保護材料のうちの一部の保護材料が、加熱加圧成形装置の加圧面に接触せずに加熱加圧がなされる場合がある。

このように、本発明においては熱融着性の被積層材料を含む積層板にシワなどの外観不良が発生することを防止するために保護材料を使用する。なお、特開昭 60-109835 や特開平 4-89254 には、装置の加圧面と被積層材料との間に保護材料を挟んで加熱加圧成形する方法が記載されているが、いずれも、

熱硬化性型の積層板を製造するものであり、それゆえ加熱加圧成形温度は200℃以下と低い場合がほとんどで、もともとシワなどの外観不良も発生しにくいものであり、その目的も、本発明の効果であるシワの発生を防ぐというのではなく、金属箔表面の傷や打痕の発生を防いだり、熱ラミネート後の硬化炉における積層板の反りの発生を防ぐものであった。あるいは樹脂溜まりのある平滑性に乏しい樹脂含浸紙や樹脂含浸ガラス布等により滑らかなラミネート加工が阻害される等の問題が発生する場合に保護材料を用いるときがあるが、本願発明の目的とは大きく異なる。

従って、本発明においては、保護材料は、加熱時にある程度の硬さを保持しないと、保護材料としての役割を担うことが出来ないことから、貼り合わせるときの温度での引張弾性率が490N/mm<sup>2</sup>以上を保持することが望ましい。

この引張弾性率が490N/mm<sup>2</sup>未満であると、加熱加圧する圧力によっては、保護材料にワレが発生する場合がある。又、保護材料の線膨張係数は100ppm/℃以下であることが好ましい。線膨張係数が100ppm/℃より大きいと、ラミネート加工時の加熱-冷却サイクルによって被積層材料に比べて保護材料の寸法が大きく変化するため、ラミネート加工後に被積層材料の表面にシワを生じさせるという悪影響を及ぼす。

保護材料は、ラミネートするときに被積層物の収縮挙動を制限し、製品のシワ等の外観不良の発生を防ぐ目的を満たすものであれば何でも良い。ただし、保護材料は、加工時の温度に耐え得るものでなければならず、例えば、250℃で加工する場合は、250℃以上の耐熱性を有するポリイミドフィルムであることが、300℃で加工する場合は、300℃以上の耐熱性を有するポリイミドフィルムであることが好ましい。又、例えば、ポリフェニレンサルファイトフィルムを保護材料として使用を試みても、加熱加圧の温度が300℃では、保護材料が伸びてしまい、加工が出来ない。又、一般に市販されているポリイミドフィルムを保護材料として使用する場合、ラミネート加工後の積層板のシワ形成を抑制する



という点から、保護材料の厚みは $50\mu\text{m}$ 以上が好ましい。保護材料の厚みが $75\mu\text{m}$ 以上であればシワ形成はほぼ完全に抑制でき、更に好ましい。

被積層材料を加熱加圧する際に、保護材料は配された状態で所定の温度になっていなければならないため、被積層材料を加熱加圧する前に保護材料を予備加熱しておくことが好ましい。保護材料に起因する加熱による膨張シワを軽減するという点から、この保護材料の予備加熱温度は加熱加圧時の温度以上とすることが好ましい。又、保護材料の加熱は、例えば、加熱ロールやベルトを構成要素の1つとする加熱加圧成形装置、具体的には、熱ロールラミネート機およびダブルベルトプレス機を用いる場合は、前記加熱ロールやベルトの一部とそれを覆う形で接触することによって、あらかじめ加熱することが可能である。このとき、前記熱ロールやベルトに保護材料が接触する時間は、1秒以上、さらには10秒以上、特には15秒以上であることが好ましい。この接触時間に合わせて、適宜ロール径を選択し、例えば、保護材料を加熱ロールの一部、 $1/4$ 周以上、 $1/2$ 周以上の距離を加熱ロールに抱かせることによって、保護材料の予備加熱が出来る。これにより、被積層材料が貼り合わされる前の時点で、保護材料が所定の温度になり、保護材料の膨張シワもなくなった状態で、被積層材料どうしを貼り合わせることができ、シワのない積層板を作製することが出来る。図3(a)は、保護材料(保護フィルム3)を、加熱ロール4の $1/2$ 周分加熱加圧ロール4に抱かせた態様を示す。図3(b)は、保護材料(保護フィルム3)を、加熱加圧ロールである金属ロール4の $1/4$ 周分金属ロール4に抱かせた態様を示す。加熱加圧直後、保護材料と、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料即ち積層板とは軽く密着している。その積層板と上下保護材料とを剥離する際、剥離された保護材料が進行してゆくパスラインが上下で非対称であった場合、上下どちらかの保護材料が先に剥離し、残りの保護材料と積層板が剥離する時に保護材料と積層板が軽く密着しているため、積層板が保護材料の方に引っ張られながら剥離され、積層板がカールしてしまう。これを防ぐために、上下保護材料を剥離する際は

、積層板を対称面として上下保護材料の剥離角度を同等にすることが好ましい。

図1にこの上下保護材料の剥離角度をそれぞれ $\alpha 1$ 、 $\alpha 2$ として示す。剥離角度は、保護材料である保護フィルム3と、積層板6とのなす角度である。図1 (a)は $\alpha 1$ 、 $\alpha 2$ がともに鋭角の場合を、図1 (b a)は $\alpha 1$ 、 $\alpha 2$ がともに直角の場合を示す。いずれの場合も安定した加工が行われるが、上下の剥離角度の差、 $|\alpha 1 - \alpha 2|$ は30度以内であることが好ましく、さらには10度以内が好ましい。

保護材料を剥離する際に、被加工物の温度が高いと、保護材料がはがれにくく、無理にはがすと積層板がカールしてしまうことがあるので、保護材料を剥離する際の積層板の温度は、熱可塑性樹脂を被積層材料又はその構成要素のひとつとして使用する場合には、その熱可塑性樹脂のTg以下の温度が好ましい。より好ましくはTgよりも50℃以上低い温度、更に好ましくはTgよりも100℃以上低い温度である。最も好ましくは室温まで冷却された時点で保護材料を積層板から剥離するのが好ましい。

このためには、前述の図1の態様における加熱加圧成形装置10に示すように、金属ロール4の下流に剥離補助ロール8を設け、金属ロール4と剥離補助ロール8との間で被加工物を冷却することが好ましい。

本発明においては、前記保護材料を繰り返し使用することが出来る。熱ロールラミネート機の前後に被積層材料の繰出・巻取装置を設置するのはもちろんのこと、保護材料用の繰出・巻取装置を併設することによって、一度使用された保護材料を巻取装置で巻き取り、繰出側に再度設置することで、保護材料を再利用することが出来る。巻き取る際に、端部位置検出装置と巻取位置修正装置を設置して、精度よく保護材料の端部を揃えて巻き取っても構わない。

一方、加熱加圧成形装置により貼り合わされる前までの熱融着性の被積層材料に作用する張力は、該熱融着性の被積層材料が安定的に直進する必要最低限とすることが望ましい。具体的には、例えば、熱融着性の被積層材料として、非熱可

塑性ポリイミドフィルムの両面にガラス転移温度 $190^{\circ}\text{C}$ の熱可塑性ポリイミド樹脂成分を有する厚みが $25\mu\text{m}$ の3層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を用い、その両側に $18\mu\text{m}$ の圧延銅箔、さらにその両側に保護材料としてポリイミドフィルム（鐘淵化学工業株式会社製 アピカル125AH）を、図1（a）に示す装置と同様の加熱加圧成形装置を用いて、温度 $300^{\circ}\text{C}$ 、線圧 $490\text{N}/\text{cm}$ 、加工速度 $2\text{m}/\text{min}$ の条件で耐熱性フレキシブル積層板を作製し、その時の熱融着性の被積層材料のフィルムの張力を $0.5\text{N}/\text{mm}^2$ 、銅箔の張力を $10\text{N}/\text{mm}^2$ としたときは、寸法変化率が $-0.037\%$ （MD）、 $0.034\%$ （TD）ときわめて小さくなる。ここで寸法変化率は、該熱融着性の被積層材料と金属材料とが貼り合わされた積層板に対する、その積層板から前面エッチング等により金属材料を除去して $150^{\circ}\text{C}$ で30分間加熱し、次いで室温まで戻したあとの積層板の、寸法変化率である。

同様の条件で、熱融着性の被積層材料のフィルムの張力を $0.01\text{N}/\text{mm}^2$ 、銅箔の張力を $5\text{N}/\text{mm}^2$ としたときは、フィルム蛇行により長尺のサンプルを作製できず、熱融着性の被積層材料の張力を $0.1\sim 3.0\text{N}/\text{mm}^2$ の範囲で調整することが、走行安定性のうえでも、寸法変化率を低く抑えるうえでも好ましい。又、金属材料の張力は、該熱融着性の被積層材料の張力の3倍以上とすることが好ましい。

熱融着性の被積層材料の張力や、金属材料の張力の条件をこのようにすることにより、寸法変化率の小さな積層板を得ることが出来る。即ち、該熱融着性の被積層材料と金属材料とが貼り合わされた積層板に対する、前面エッチング等により金属材料を除去して $150^{\circ}\text{C}$ で30分間加熱した積層板の、寸法変化率の絶対値を、MD方向及びTD方向ともに $0.1\%$ 以下にすることが出来る。

本発明における熱融着性の被積層材料は、接着フィルムとして用いられる。本発明における熱融着性の被積層材料としては、熱融着性を有する樹脂から成る単層フィルム、熱融着性を有さないコア層の両側に熱融着性を有する樹脂層を形成

して成る複数層フィルム、紙、ガラスクロス等の基材に熱融着性を有する樹脂を含浸したシート等が挙げられるが、ガラスクロス等の剛性の高い基材を使用すると屈曲性が劣るので、フレキシブル積層板用としては、熱融着性を有する樹脂から成る単層フィルム、熱融着性を有さないコア層の両側に熱融着性を有する樹脂層を形成して成る複数層フィルムが好ましい。熱融着性を有する樹脂から成る単層フィルム、熱融着性を有さないコア層の両側に熱融着性を有する樹脂層を形成して成る複数層フィルムとしては耐熱性を有するものが好ましく、接着成分が熱可塑性ポリアミドイミド系成分から成るもの、例えば、熱可塑性ポリアミドイミド、熱可塑性ポリエーテルイミド、熱可塑性ポリエステルイミド等が好適に用いられ得る。これらの耐熱性の熱可塑性樹脂を接着成分中に50%以上含有する熱融着性の被積層材料も、接着フィルムとして本発明には好ましく用いられる。特に、エポキシ樹脂やアクリル樹脂のような熱硬化性樹脂等を配合した接着フィルムの使用も好ましい。各種特性の向上のために、接着フィルムには種々の添加剤が配合されていてもかまわない。

接着フィルムの構成としては、耐熱性の接着層を外側に有しているものであれば、熱融着性の接着成分のみから成る単層の構成であってもかまわないが、寸法安定性の観点から、熱融着性を有さないコア層の両側に熱融着性の接着層が密着状態で配された構成の3層構造のフィルムが好ましい。

接着フィルムの作製方法については特に限定しないが、接着剤層単層からなる場合、ベルトキャスト法、押出法等により製膜することが出来る。又、接着フィルムの構成が接着層／熱融着性を有さないコア層／接着層という3層からなる場合、耐熱性フィルムの両面に接着剤を、片面ずつ、もしくは両面同時に塗布して3層の接着フィルムを作製する方法や、耐熱性フィルムの両面に、接着成分から成る単層の接着フィルムを配して貼り合わせて3層の接着フィルムを作製する方法がある。接着剤を塗布して3層の接着フィルムを作製する方法において、特にポリアミド系の接着剤を使用する場合、ポリアミック酸の状態で塗布し、次いで

乾燥させながらイミドを行なう方法と、そのまま可溶性ポリイミド樹脂を塗布し乾燥させる方法があり、接着剤層を形成する方法は特に問わない。その他に、接着層／熱融着性を有さないコア層／接着層のそれぞれの樹脂を共押出しして、一度に耐熱性接着フィルムを製膜する方法もある。

更に、本発明に用いられる熱融着性の被積層材料としては、基板上にＩＣ、抵抗、コンデンサ等の部品を実装し、半田リフロー工程にかけた時の熱で基板の剥離がないという点から、ガラス転移温度が１７０℃以上の耐熱性接着材料であることが更に好ましい。

本発明における複数の被積層材料のうちのひとつとしては、導電層となる金属材料、なかでも金属箔を用いるのが好ましい。

金属箔については、銅及び銅合金、ステンレス鋼及びその合金、ニッケル及びニッケル合金（４２合金も含む）、アルミニウム及びアルミニウム合金等が挙げられる。好ましくは銅及び銅合金であり、耐熱性フレキシブル基板の屈曲性を考えると５０μｍ以下の銅箔がより好ましい。銅箔の種類としては圧延銅箔、電解銅箔、ＨＴＥ銅箔等が挙げられ特に制限はなく、これらの表面に接着剤、防錆層や耐熱層（例えば、クロム、亜鉛、ニッケルなどのメッキ処理）などを形成したもののでも構わない。

特に３５μｍ以下の銅箔はそれ以上の厚みの銅箔に比べてコシがなく、熱ラミネートする際にシワを生じやすいため、３５μｍ以下の銅箔について、本発明は顕著な効果を発揮する。

熱融着性の被積層材料と接合する面の金属材料の表面あらさは、積層板の性能に大きな影響を及ぼす。本発明では、熱融着性の被積層材料と接合する側の金属材料の表面あらさの最大高さ（ $R_{max}$ ）が１５μｍ以下、十点平均あらさ（ $R_z$ ）が１０μｍ以下であり、かつ中心線平均あらさ（ $R_a$ ）が２μｍ以下である金属材料を選定して使用する。本明細書においては、 $R_{max}$ 、 $R_z$ 、 $R_a$ はＪＩＳ Ｂ０６０１に従い測定される値である。表面あらさが大きいと、熱融着性

の被積層材料と金属材料との層間にボイドが生成し易くなる傾向にある。

加熱加圧成形装置については、被積層材料を加熱して圧力を加えて加熱加圧する装置であれば特にこだわらず、例えば、単動プレス装置、多段プレス装置、真空プレス装置、多段真空プレス装置、オートクレープ装置、熱ロールラミネート機、ダブルベルトプレス機等が挙げられ、これらのうち熱ロールラミネート機、ダブルベルトプレス機が、効率的に連続生産可能な点で、又、安定した品質の積層板が得られる点で好ましく用いられ得る。被積層材料、保護材料としてロール状に巻かれた長尺シート状物をこれらの装置と組み合わせて用いると、積層板の更に効率的な連続製造が可能となり生産性の向上に繋がる。特に、熱ロールラミネート機、或いはダブルベルトプレス機とロール状に巻かれた長尺シート状物とを組み合わせて用いると最も効率よく積層板の連続製造が可能となる。

加熱方法については、所定の温度で加熱することが出来るものであれば特にこだわらず、熱媒循環方式、熱風加熱方式、誘電加熱方式等が挙げられる。加熱温度は200℃以上が好ましいが、電子部品実装のために積層板が雰囲気温度240℃の半田リフロー炉を通過する用途に供される場合には、それに応じたT<sub>g</sub>を有する熱融着シートを使用するため240℃以上の加熱が好ましい。加圧方式も所定の圧力を加えることが出来るものであれば特に限定されず、油圧方式、空気圧方式、ギャップ間圧力方式等が挙げられる。

又、本発明において、一對若しくは複数対の金属ロールを用いる態様は、ダブルベルトプレス機で加工したときにベルトの継ぎ目に起因して生ずる加圧ムラを生じさせることがなく、又、装置コストやメンテナンスコストがダブルベルトプレス機より少ない。

対の金属ロールではなくて、金属-ゴムロールを使用することは、前述のように、ゴムの耐熱性の点で問題がある。例えば、非熱可塑性ポリイミドフィルムの両面にガラス転移温度190℃の熱可塑性ポリイミドを配した耐熱性接着フィルムと圧延銅箔とを、金属-ゴムロール（金属ロール：ロール径300mm、真円

度0.002mm、円筒度0.002mm、表面粗さ0.001mm、300℃での温度分布精度 $\pm 2^{\circ}\text{C}$ )からなる加熱加圧成形装置を用いて、温度300℃、線圧490N/cm、加工速度2m/minの条件でラミネート加工を試みても、加熱によりゴムロールが劣化し、ラミネートすることが出来ない。

以下に金属ロールを用いる態様の詳細について説明する。本発明の金属ロールを用いる態様においては、図1(a)、(b)に示すような加熱加圧成形装置10が用いられる。この加熱加圧成形装置10により、耐熱性を有する熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料、例えば、熱可塑性ポリイミドと銅箔との貼り合わせが行われる。図1においては、加熱加圧成形装置10は加熱加圧のための一対の金属ロール4を備え、その一対の金属ロール4には、耐熱性の接着フィルムのような接着フィルム2と、その接着フィルム2を挟んで銅箔1が供給される。接着フィルム2と銅箔1とは加熱加圧され接着され積層板6となり、巻き取られる。

加熱加圧成形装置は、図4に示すような態様も可能である。図4の加熱加圧成形装置10aは複数対の金属ロール4aを備え、それらの対になった金属ロール4aは、フィルムの進行方向に直列に配され、接着フィルム2と、その接着フィルム2を挟んだ銅箔1が、対になった金属ロール4aを配列順に通過し加熱加圧成形加工される。図4においては、金属ロール4aの対のうち少なくとも一対、例えば、図面視で最も左に位置する金属ロールの対、は加熱加圧ロールである。

金属ロールのロール径は200mm以上が好ましく、200mmより小さい径では、加熱加圧時に圧力が被積層材料に急激にかかるため、ラミネート後に外観不良となる。

図4、或いは図1に示されるような金属ロールを用いる加熱加圧成形装置においては、被加工物を幅方向に均一な圧力で加圧するために、金属ロールの外見寸法は、真円度が0.05mm以下、かつ円筒度が0.05mm以下、表面粗さが0.01mm以下であることが好ましい。上下2本の金属ロールが、それ以上の

寸法誤差があると、ロール間に上下合わせて0.1 mmの隙間が出来ることになり、被積層材料の厚みが0.1 mm以下である場合、加圧される部分とされない部分ができ、サンプルが均一に加圧されにくい傾向にある。又、表面の粗さが0.01 mmより大きいとロール表面に凸凹ができ、それによって均一に加圧されにくい傾向にある。

さらに、幅方向に均一な圧力で加圧し、かつ均一な温度を加えるために金属ロール面長方向の温度差が $\pm 10^{\circ}\text{C}$ 以下であることが好ましい。金属ロールの中央部に比べて端部に $10^{\circ}\text{C}$ 以上の温度差がある場合、サンプルの幅方向に加圧時の温度ムラが生じることに加えて、温度差による金属ロールの膨張率の違いによって生じる中央部と端部のロール径の違い、いわゆる温度クラウンが生じる。この温度クラウンは $1^{\circ}\text{C}$ につき約 $3\text{ }\mu\text{m}$ のロールの熱変形を伴うので、 $10^{\circ}\text{C}$ の温度差では $30\text{ }\mu\text{m}$ 、上下合わせて $60\text{ }\mu\text{m}$ 程度の隙間が出来る。したがって、金属ロールの面長方向に $10^{\circ}\text{C}$ 以上の温度差があると、サンプルにかかる圧力を均一に出来ない傾向にある。

金属ロール表面は、表面がショア硬さHs 50以上であることが必要である。これ以下の硬さであると、加熱加圧ロールが上下とも金属ロールであるため、加圧中に金属屑等のロール表面への付着物や、被積層材料の折れ曲がりによる急激な段差によって、ロール表面に傷がついてしまう。このため、金属ロールに耐摩耗性、非粘着性、耐熱性等の特性を付与する目的で、金属素地に工業用クロムメッキを施すことが好ましい。この工業用クロムメッキを施すことで、金属素地の硬さHs 20～30がHs 50以上に向上する。メッキの厚みは0.05 mmより薄いと、長時間高温で使用していると、表面のメッキにクラックが生じるため、0.05 mm以上の厚みが好ましい。

更に又、加熱加圧の際に金属ロールの長手方向に生ずる隙間のバラツキは、長手方向の加圧力のバラツキとなるが、本発明の加熱加圧成形装置においては、保護材料で被積層材料を挟んで加熱加圧するので、金属ロールの長手方向に生ずる



隙間のバラツキが保護材料の変形により吸収され、被積層材料が均一に加圧される。保護材料の厚みが $50\mu\text{m}$ 以上であると、被積層材料は均一に加熱加圧され、均一に接着される。よって、本発明の加熱加圧成形装置は図5に示すような態様であることが好ましい。図5において、加熱加圧成形装置10bは、保護材料3を加熱加圧用の金属ロール4に送り込む送り出し手段22と、保護材料を所定の位置で、貼り合わされた被積層材料5から剥離させる保護材料のガイド手段24と、剥離された保護材料3を引き取る引取り手段26を備える。被積層材料5は、接着フィルム2と銅箔1とから成る。送り出し手段22は、保護材料3の巻き体33の中芯部に装着する回転ロール23であるが、保護材料3を送り出す機能を有するものであれば、図示されているものに限らない。引取り手段26は、剥離された保護材料3を引き取って巻き体34として回転ロール27に巻き取るものであるが、保護材料3を引き取る機能を有するものであれば、図示されているものに限らない。ガイド手段24は剥離補助ロール8から成る。剥離補助ロール8は、保護フィルム3のような保護材料を定位置で剥離させるためにガイドするガイド手段であり、保護材料との接触により従動する従動ロールであってもよい。積極回転するロールであってもよい。固定したロールであってもよい。ガイド手段24は保護材料をガイドするものであれば、断面が非円形の棒状或いは板状の部材であってもよい。

なお、加熱加圧用の金属ロール4に保護材料と同じ材料の樹脂を巻きつけて或いはコートして接着しておく態様も加圧の均一化に有効ではあるが、使用しているうちに接着がはがれ、長時間の使用に耐えないという難点がある。又、巻きつけられた保護材料は繰り返し同一個所が高温で熱せられ且つ加圧されるので劣化の進行が速いという問題もある。本発明においては、長尺の保護材料を使用できるので、その長尺の保護材料を使用後に再び再使用したとしても、同一個所が加熱加圧される回数は、上記の金属ロールに保護材料と同じ材料の樹脂を巻きつけて接着しておく態様に比べてはるかに少なくなるので、継続的な生産が可能とな

る。

本発明により得られる積層板は、熱融着性の被積層材料を含む複数の積層材料を貼り合わせたものであり、主として電子・電気用積層板として用いられる耐熱性フレキシブル基板である。

### 実施例

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、これらの実施例は、本発明を説明するためのものであり、限定するためのものではない。

実施例中のガラス転移温度 ( $T_g$ ) は、島津製作所 DSC CELL SCC-41 (示差走査熱量計) により、窒素気流下、昇温速度  $10^\circ\text{C}/\text{分}$  にて、室温から  $400^\circ\text{C}$  までの温度範囲で測定した。

#### (実施例 1)

$T_g 190^\circ\text{C}$  の  $25\ \mu\text{m}$  の熱可塑性ポリイミドフィルム (鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO TP-T) の両側に厚みが  $18\ \mu\text{m}$  の電解銅箔を配して被積層材料とし、さらにその被積層材料の両側に保護フィルムとして  $125\ \mu\text{m}$  のポリイミドフィルム (鐘淵化学工業株式会社製 アピカル 125 AH) を配して、図 3 (b) に示す加熱加圧成形装置 10 (温度  $260^\circ\text{C}$ 、加工速度  $0.5\ \text{m}/\text{min}$ 、線圧  $980\ \text{N}/\text{cm}$ ) で加熱加圧し、次いで加熱加圧により貼り合わされた被積層材料とそれに軽く密着する保護フィルムとを室温まで冷却後、保護フィルムを剥離して、フレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

#### (実施例 2)

実施例 1 の電解銅箔のかわりに、よりシワが発生しやすい厚みが  $18\ \mu\text{m}$  の圧延銅箔を配した他は、実施例 1 と同様の条件でフレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

#### (実施例 3)

実施例 1 で用いた加熱加圧成形装置のかわりにダブルベルトプレス機（温度 300℃、加工速度 0.5m/min、線圧 980N/cm）を用いた他は実施例 1 と同様の条件でフレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

（実施例 4）

実施例 1 と同様の熱可塑性ポリイミドフィルムの両側に実施例 2 と同様の圧延銅箔を配し、さらにその両側に保護フィルムとして実施例 1 と同様のポリイミドフィルムを配して、ダブルベルトプレス機（温度 300℃、加工速度 0.5m/min、線圧 980N/cm）でフレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

（実施例 5）

非熱可塑性ポリイミドフィルムの両面にガラス転移温度 190℃の熱可塑性ポリイミド樹脂成分を有する厚みが 25μm の 3 層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を準備し、その両側に厚みが 18μm の電解銅箔、さらにその両側に保護材料として 125μm のポリイミドフィルム（鐘淵化学工業株式会社製 アピカル 125 AH）を配して、熱ロールラミネート機で、温度 260℃、線圧 980N/cm、加工速度 0.5m/min の条件でフレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

（実施例 6）

実施例 5 で用いた電解銅箔の代わりに、その電解銅箔よりシワが発生しやすい厚みが 18μm の圧延銅箔を用いた他は、実施例 5 と同様にしてフレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

（実施例 7）

熱ロールラミネート機の温度 300℃、加工速度 2.0m/min とした他

は、実施例 5 と同様にしてフレキシブル積層板を作製した。その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 8)

熱ロールラミネート機の温度 300℃、加工速度 2.0 m/min とした他は、実施例 6 と同様にしてフレキシブル積層板を作製した。その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(比較例 1)

保護フィルムを使用せず、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料を室温まで冷却し、それ以外は実施例 1 と同様にしてフレキシブル積層板を得た。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

(比較例 2)

保護フィルムを使用せず、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料を室温まで冷却し、それ以外は実施例 2 と同様にしてフレキシブル積層板を得た。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

(比較例 3)

保護フィルムを使用せず、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料を室温まで冷却し、それ以外は実施例 5 と同様にしてフレキシブル積層板を得た。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

(比較例 4)

保護フィルムを使用せず、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料を室温まで冷却し、それ以外は実施例 6 と同様にしてフレキシブル積層板を得た。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

(比較例 5)

保護フィルムを使用せず、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料を室温まで冷却し、それ以外は実施例 7 と同様にしてフレキシブル積層板を得た。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

（比較例 6）

保護フィルムを使用せず、加熱加圧により貼り合わされた被積層材料を室温まで冷却し、それ以外は実施例 8 と同様にしてフレキシブル積層板を得た。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

（実施例 9）

接着フィルムとして実施例 2 に用いたと同様の熱可塑性ポリイミドフィルムを用い、その両側に厚みが  $18\mu\text{m}$  の圧延銅箔、さらにその両側に実施例 2 に用いたと同様の保護材料を配して、実施例 1 と同様の加熱加圧成形装置を用いて、温度  $300^{\circ}\text{C}$ 、線圧  $490\text{N}/\text{cm}$ 、加工速度  $2\text{m}/\text{min}$  の条件で加熱加圧した。このとき、このほかの条件を表 1 に示すようにして耐熱性フレキシブル積層板を作製した。その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。引張弾性率は、JIS K 713 に準拠し、島津製作所（株）製：オートグラフ S-100-C を用いてクロスヘッドスピード（引張速度） $200\text{mm}/\text{min}$  で測定した。なお、本明細書においては、線膨張係数は、JIS K 7197 に準拠して、理学電機（株）製：熱分析装置 TMA 8140 を用いて昇温速度  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  で測定した。

（実施例 10）

接着フィルムとして実施例 5 で用いたと同様の 3 層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を用いた他は、実施例 9 と同様にして耐熱性フレキシブル積層板を作製した。その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

（比較例 7）

表 1 に比較例 7 の条件として示す条件のほかは実施例 9 と同様にしてフレキシブル積層板を作製した。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

（比較例 8）

接着フィルムとして実施例 10 で用いたと同様の接着フィルムを用いた他は比較例 7 と同様にしてフレキシブル積層板を作製した。

その結果、ラミネート加工の進行方向に縦筋が入ったようなシワが発生した。

【表 1】

	実施例 9、10	比較例 7、8
保護材料	ポリイミドフィルム	なし
初期引張弾性率 (N/mm <sup>2</sup> ) at 300℃	1176	—
線膨張係数 (ppm/℃) at 200-300℃	40	—
厚み (mm)	75	—
リサイクル	可能	—
外観	シワなし	シワあり

(実施例 11)

接着フィルムとして実施例 2 に用いたと同様の熱可塑性ポリイミドフィルムを用い、その両側に厚みが 18  $\mu$ m の圧延銅箔、さらにその両側に実施例 2 に用いたと同様の保護材料を配して、図 1 (a) に示す態様の加熱加圧成形装置を用いて、温度 300℃、線圧 490 N/cm、加工速度 2 m/min の条件で加熱加圧して耐熱性フレキシブル積層板 6 を作製した。

その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 12)

接着フィルムとして実施例 5 で用いたと同様の 3 層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を用いた他は、実施例 11 と同様にし

て耐熱性フレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 1 3)

図 1 (b) に示す加熱加圧成形装置 10 を用いた他は実施例 1 1 と同様にして耐熱性フレキシブル積層板を作製した。その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 1 4)

接着フィルムとして実施例 5 で用いたと同様の 3 層構造の接着フィルム (鐘淵化学工業株式会社製 P I X E O B P) を用いた他は、実施例 1 3 と同様にして耐熱性フレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 1 5)

図 3 (a) に示す加熱加圧成形装置 10 を用いて、 $T_g$  190℃の 25  $\mu$ m の熱可塑性ポリイミドフィルム 2 (鐘淵化学工業株式会社製 P I X E O T P - T) の両側に厚みが 18  $\mu$ m の圧延銅箔 1、さらにその両側に保護フィルム 1 としてポリイミドフィルム (鐘淵化学工業株式会社製 アピカル 1 2 5 A H) を配して、温度 300℃、線圧 490 N/cm、加工速度 2 m/min の条件で耐熱性フレキシブル積層板 6 を作製した。このときの保護材料である保護フィルム 1 と加熱ロール 4 との接触時間は 15 秒とした。その結果、外観にシワ等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 1 6)

接着フィルムとして実施例 5 で用いたと同様の 3 層構造の接着フィルム (鐘淵化学工業株式会社製 P I X E O B P) を用いた他は、実施例 1 5 と同様にして耐熱性フレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例 1 7)

図3 (b) に示す加熱加圧成形装置10を用い、保護フィルム1と加熱ロール4との接触時間は7.5秒とした他は実施例15と同様にして耐熱性フレキシブル積層板6を作製した。その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

(実施例18)

接着フィルムとして実施例5で用いたと同様の3層構造の接着フィルム(鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP)を用いた他は、実施例17と同様にして耐熱性フレキシブル積層板を作製した。

その結果、外観にシワ・カール等の不良のないフレキシブル積層板を得た。

以下の実施例19～21に示した銅箔の表面あらさの最大高さ(Rmax)、十点平均あらさ(Rz)、中心線平均あらさ(Ra)はJIS B0601の定義に従い、カタログ値から抜粋した。又、マイクロボイド面積比率は、100mm角の試料の積層板の銅箔を塩化第二鉄溶液で全面エッチングした後、熱可塑性ポリイミド層の表面を光学顕微鏡(NIKON(株)製 オプチフォト; 100倍)で観察し、未接着部位と観察される部分の面積を算出し、面積比率で示した値である。

(実施例19～21)

接着フィルムとしてTg190℃の25μmの熱可塑性ポリイミドフィルム(鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO TP-T)を用い、その両側に厚み18μmの銅箔、さらにその両側に保護材料としてポリイミドフィルム(鐘淵化学工業株式会社製 アピカル)を配置して、図3 (b) に示す加熱加圧成形装置10を用い、温度300℃、線圧490N/cm、加工速度2m/minの条件で積層し、積層板を作製した。詳細条件は表2に示す。その結果、10～50μm程度のボイドは観測できず、マイクロボイド率が0%で、半田耐熱試験による銅箔表面の膨れは観察されなかった。なお、半田耐熱試験は以下のように行なった。即ち、JIS C6471に従い作製したサンプルを、150℃×30分で乾燥



させた後、20℃／60％RHの恒温室で24時間調製し、300℃のはんだ浴に1分間、浸漬する。そのサンプルの銅箔片面部、両面部に膨れがないか観察した。又、吸湿条件では、同条件で作製したサンプルを40℃／90％RHの環境試験機で96時間調製し、260℃のはんだ浴に10秒浸漬したサンプルの銅箔片面部、両面部に膨れがないか観察した。

【表2】

		実施例 19, 22	実施例 20, 23	実施例 21, 24
加熱加圧装置		熱ロールラミ ネート機	熱ロールラミ ネート機	ダブルベルト プレス機
銅箔種類		圧延	電解	圧延
銅箔品番		BHY (ジャパンエナジ-)	JTC (ジャパンエナジ-)	BHY (ジャパンエナジ-)
銅箔表面 ( $\mu\text{m}$ )	Rmax	1.1	7	1.1
	Rz	0.9	6	0.9
	Ra	0.1	1.0	0.1
マイクロボイド比率 (%)		0	0	0
半田耐熱 (C- 96/40/90)		膨れなし	膨れなし	膨れなし

## (実施例 22)

接着フィルムとして実施例 5 で用いたと同様の 3 層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を用いた他は、実施例 19 と同様にして積層板を作製した。その結果、10～50  $\mu\text{m}$  程度のボイドは観測できず、マイクロボイド率が 0 % で、半田耐熱試験による銅箔表面の膨れは観察されなかった。

## (実施例 23)

接着フィルムとして実施例 5 で用いたと同様の 3 層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を用いた他は、実施例 20 と同様にして積層板を作製した。その結果、10～50  $\mu\text{m}$  程度のボイドは観測できず、マ

マイクロボイド率が0%で、半田耐熱試験による銅箔表面の膨れは観察されなかった

(実施例24)

接着フィルムとして実施例5で用いたと同様の3層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を用いた他は、実施例21と同様にし積層板を作製した。その結果、10～50 $\mu$ m程度のボイドは観測できず、マイクロボイド率が0%で、半田耐熱試験による銅箔表面の膨れは観察されなかった

(実施例25)

Rmax 16 $\mu$ m、Rz 11 $\mu$ m、Ra 2.2 $\mu$ mの銅箔を用いたほかは、実施例19と同様の加工条件で積層板を作製した。その結果、外観にシワ・カールのないフレキシブル積層板を得たが、マイクロボイド率が20%以上で、半田耐熱試験による銅箔表面の膨れが観察された。

(実施例26～31)

非熱可塑性ポリイミドフィルムの両面にガラス転移温度190℃の熱可塑性ポリイミド樹脂成分を有する厚みが25 $\mu$ mの3層構造の接着フィルム（鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP）を準備し、その両側に厚みが18 $\mu$ mの圧延銅箔、さらにその両側に保護材料としてポリイミドフィルム（鐘淵化学工業株式会社製 アピカル125AH）を、実施例1と同様の加熱加圧成形装置を用いて、温度300℃、線圧490N/cm、加工速度2m/minの条件で耐熱性フレキシブル積層板を作製した。その時のフィルム、銅箔の張力と寸法変化率を表3に示す。寸法変化率は、得られた耐熱性フレキシブル積層板に対する、その積層板から銅箔を除去後150℃で30分間加熱し次いで室温に戻したあとの積層板の、寸法変化率である。寸法変化率が絶対値で0.10%以内の耐熱性フレキシブル積層板を作製することが出来た。

なお、寸法変化率は、JIS C6471（6.11寸法安定性）に準じて測

定した。

【表 3】

	熱可塑性ポリ イミド フィルム張力 N/mm <sup>2</sup>	銅箔張力 N/mm <sup>2</sup>	寸法変化率 (%)	
			MD	TD
実施例 2 6	0.5	10	-0.037	+0.034
実施例 2 7	1.0	10	-0.058	+0.052
実施例 2 8	1.0	25	-0.043	+0.039
実施例 2 9	3.0	25	-0.087	+0.084
実施例 3 0	1.0	1.0	-0.152	+0.146
実施例 3 1	5.0	25	-0.308	+0.291

(実施例 3 2)

図 1 (a) に示す態様で、 接着フィルム 2 として非熱可塑性ポリイミドフィルムの両面にガラス転移温度 190℃の熱可塑性ポリイミド樹脂成分を有する厚みが 25 μm の 3 層構造の接着フィルム (鐘淵化学工業株式会社製 PIXEO BP) を使用し、厚み 18 μm の圧延銅箔 1 とを加熱加圧成形装置 (加熱加圧成形装置) 10 を用いて、温度 300℃、線圧 490 N/cm、加工速度 2 m/min の条件でラミネート加工を行った。その結果、シワや接着ムラのない良好なサンプルが得られた。条件の詳細を表 4 に示す。

なお、本明細書においては、金属ロールの真円度は JIS B0607 に、円筒度は JIS B0608 に、表面粗さは JIS B0601 に、ショア硬度は JIS Z2246 にそれぞれ準拠した方法で測定したものである。条件の詳細は表 4 に示す。

(実施例 3 3)

加熱加圧成形装置の金属ロールのロール径が 150 mm のものを用い、表 4 に示す条件の他は、実施例 3 2 と同様にしてラミネート加工を行った。その結果、ラミネート可能であったが、実施例 3 2 では見られなかったシワがサンプル表面

に所々発生した。それ以外の点は良好なサンプルが得られた。

(実施例 3 4)

加熱加圧成形装置の金属ロールとして、真円度が0.07 mm、円筒度が0.08 mm、表面粗さが0.01 mmのものをを用い、表4に示す条件の他は、実施例 3 2と同様にしてラミネート加工を行った。その結果、ロールの圧カムラにより、所々接着していない部分が発生したがそれ以外の点は良好なサンプルが得られた。

(実施例 3 5)

加熱加圧成形装置の金属ロールとして、300℃での温度分布精度が±1.3℃のものをを用い、表4に示す条件の他は、実施例 3 2と同様にしてラミネート加工を行った。その結果、中央部は接着しているが、端部は温度クラウンによってできた金属ロール間の隙間により、サンプルを加圧出来ない状態ができ、サンプルの端部には実施例 3 2では見られなかった未接着の部分が発生したがそれ以外の点は良好なサンプルが得られた。

(実施例 3 6)

加熱加圧成形装置の金属ロールとして、表面硬さ（ショア硬度）がHs 20である熱ロールを用い、表4に示す条件の他は、実施例 3 2と同様にしてラミネート加工を行った。その結果、金属屑等の付着、サンプルの折れによる段差によって、延べ50時間運転後、ロール表面にうっすらとしたキズが発生した。キズ部分は未加圧部分となり、サンプルに実施例 3 2では見られなかった接着ムラが一部生じたがそれ以外は良好なサンプルが得られた。

【表 4】

	実施例 3 2	実施例 3 3	実施例 3 4	実施例 3 5	実施例 3 6
ロール構成	金属－ 金属	金属－ 金属	金属－ 金属	金属－ 金属	金属－ 金属
ロール径 (mm)	3 0 0	1 5 0	3 0 0	3 0 0	3 0 0
口 真円度 (mm)	0.002	0.001	0.07	0.002	0.002
円筒度 (mm)	0.002	0.001	0.08	0.002	0.002
ル 表面粗さ (mm)	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
3 0 0℃での 温度分布精度(℃)	± 2	± 2	± 2	± 1 3	± 2
ショア硬さ	Hs70	Hs70	Hs70	Hs70	Hs20
結果	ムラ、接 着 ム ラ の ない 良 好 な サ ン プ ル が 得 られた	サ ン プ ル 表 面 の 一 部 に シ ワ が 発 生	圧 カ ム ラ に よ る 接 着 ム ラ が 所 ヲ 発 生	サ ン プ ル 端 部 に 未 接 着 の 部 分 あり	述 ベ 5 0 時 間 運 転 後、 ロ ー ル 表 面 に 一 部 キ ズ 発 生

## 産業上の利用分野

近年、エレクトロニクス製品の軽量化、小型化、高密度化に伴い、プリント基板の需要が高くなり、特に、絶縁性フィルム上に銅箔回路を形成して成るフレキシブルプリント基板の需要が高まっている。本発明により、ラミネート加工時にシワになりやすい圧延銅箔を用いた場合においても、カールのない外観良好な耐熱性の積層板を得ることが出来る。本発明のこのようなフレキシブル積層板を用いたフレキシブルプリント基板は、携帯電話、携帯型パソコンといった高密度実装部品等を実装する電子機器に広く利用される。

## 請 求 の 範 囲

1. 熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を加熱加圧成形装置により加熱加圧して貼り合わせる積層板の製造方法であって、該加熱加圧成形装置の加圧面と該複数の被積層材料との間に保護材料を配置し、200℃以上の温度で該複数の被積層材料を加熱加圧して貼り合わせ、該保護材料と、貼り合わされた該複数の被積層材料とを密着させておき、貼り合わされた該複数の被積層材料が冷却されてから、該保護材料を、貼り合わされた該複数の被積層材料から剥離することを特徴とする積層板の製造方法。
2. 前記複数の積層材料を連続的に貼り合わせることを特徴とする請求項1に記載の積層板の製造方法。
3. 前記保護材料が、ロール状に巻かれた長尺シート状形状をなすことを特徴とする請求項1又は2に記載の積層板の製造方法。
4. 前記保護材料を繰り返し使用することを特徴とする請求項1乃至3のいずれかに記載の積層板の製造方法。
5. 前記複数の被積層材料のうちの少なくとも1の被積層材料が、ロール状に巻かれた長尺シート状形状をなすことを特徴とする請求項1乃至4のいずれかに記載の積層板の製造方法。
6. 前記複数の被積層材料が前記加熱加圧成形装置で加熱加圧される前に、前記保護材料が予備加熱されていることを特徴とする請求項1乃至5のいずれかに記載の積層板の製造方法。
7. 前記予備加熱の温度が、加熱加圧の温度以上の温度であることを特徴とする請求項6に記載の積層板の製造方法。
8. 前記加熱加圧成形装置が、1対のエンドレススチールベルトを備えたダブルベルトプレス機であることを特徴とする請求項1乃至7のいずれかに記載の積層板の製造方法。
9. 前記保護材料が、前記エンドレススチールベルトの一部を覆う形で配され

予備加熱されることを特徴とする請求項 8 に記載の積層板の製造方法。

10. 前記加熱加圧成形装置が、加熱加圧用の 1 対若しくは複数対の金属ロールを備えたことを特徴とする請求項 1 乃至 7 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

11. 前記保護材料が、前記金属ロールの一部を覆う形で配され予備加熱されることを特徴とする請求項 10 に記載の積層板の製造方法。

12. 前記金属ロールの直径が 200 mm 以上であることを特徴とする請求項 10 又は 11 に記載の積層板の製造方法。

13. 前記金属ロールの真円度が 0.05 mm 以下、かつ円筒度が 0.05 mm 以下、表面粗さが 0.01 mm 以下であることを特徴とする請求項 10 乃至 12 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

14. 前記金属ロール面長方向の温度差が  $\pm 10^{\circ}\text{C}$  以下であることを特徴とする請求項 10 乃至 13 のいずれかに記載の積層板の製造方法

15. 前記金属ロールの表面硬度が Hs 50 以上であることを特徴とする請求項 10 乃至 14 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

16. 前記保護材料の厚みが 50  $\mu\text{m}$  以上であることを特徴とする請求項 10 乃至 15 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

17. 前記保護材料が、ポリイミドフィルムであることを特徴とする請求項 1 乃至 16 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

18. 前記ポリイミドフィルムが非熱可塑性であることを特徴とする請求項 17 に記載の積層板の製造方法。

19. 前記保護材料が、貼り合わせの温度における引張弾性率が  $490\text{ N/m}^2$  以上でありかつ  $200^{\circ}\text{C}$  から  $300^{\circ}\text{C}$  での線膨張係数が  $100\text{ ppm/}^{\circ}\text{C}$  以下であることを特徴とする請求項 1 乃至 18 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

20. 前記熱融着性の被積層材料の接着成分が、熱可塑性ポリイミドを 50 重

量%以上含有する樹脂であることを特徴とする請求項 1 乃至 1 9 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

2 1. 前記熱融着性の被積層材料が、熱可塑性ポリイミドを 5 0 重量%以上含有する樹脂から成る単層のフィルムであることを特徴とする請求項 2 0 に記載の積層板の製造方法。

2 2. 前記熱融着性の被積層材料が、非熱可塑性のポリイミドフィルムの片面又は両面に、熱可塑性ポリイミドを 5 0 重量%以上含有する樹脂層を有する、複数層のフィルムであることを特徴とする請求項 2 0 に記載の積層板の製造方法。

2 3. 前記熱融着性の被積層材料が、繊維シート基材に、熱可塑性ポリイミドを 5 0 重量%以上含有する樹脂を含浸したシートであることを特徴とする請求項 2 0 に記載の積層板の製造方法。

2 4. 前記熱融着性の被積層材料がガラス転移温度 1 7 0℃以上の耐熱性接着材料であることを特徴とする請求項 1 乃至 2 3 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

2 5. 前記複数の被積層材料が金属材料を含むことを特徴とする請求項 1 乃至 2 4 のいずれかに記載の積層板の製造方法。

2 6. 前記金属材料が、厚みが 5 0  $\mu$ m以下の金属箔であることを特徴とする請求項 2 5 に記載の積層板の製造方法。

2 7. 前記金属箔が、銅、ニッケル、アルミニウム及びステンレススチール並びにそれらの合金からなる群から選ばれた少なくとも一種の金属箔であることを特徴とする請求項 2 6 に記載の積層板の製造方法。

2 8. 前記金属箔が、銅箔であることを特徴とする請求項 2 7 に記載の積層板の製造方法。

2 9. 熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を加熱加圧して貼り合わせる積層板の加熱加圧成形装置であって、2 0 0℃以上の温度で該複数の被積層材料を加熱加圧して貼り合わせる、1 対若しくは複数対の金属ロールを備えたこ



とを特徴とする積層板の加熱加圧成形装置。

30. 熱融着性の被積層材料を含む複数の被積層材料を、該加熱加圧成形装置の加圧面と該複数の被積層材料との間に、該複数の被積層材料が貼り合わされた後に該複数の被積層材料からはがす保護材料を配して加熱加圧して貼り合わせる積層板の加熱加圧成形装置であって、該保護材料を送り出す送り出し手段を備え、該保護材料を剥離する位置に、貼り合わされた該複数の被積層材料に密着する該保護材料に近接して、該保護材料をガイドするガイド手段を備え、該保護材料を引き取る引取り手段を備えたことを特徴とする請求項29に記載の加熱加圧成形装置。

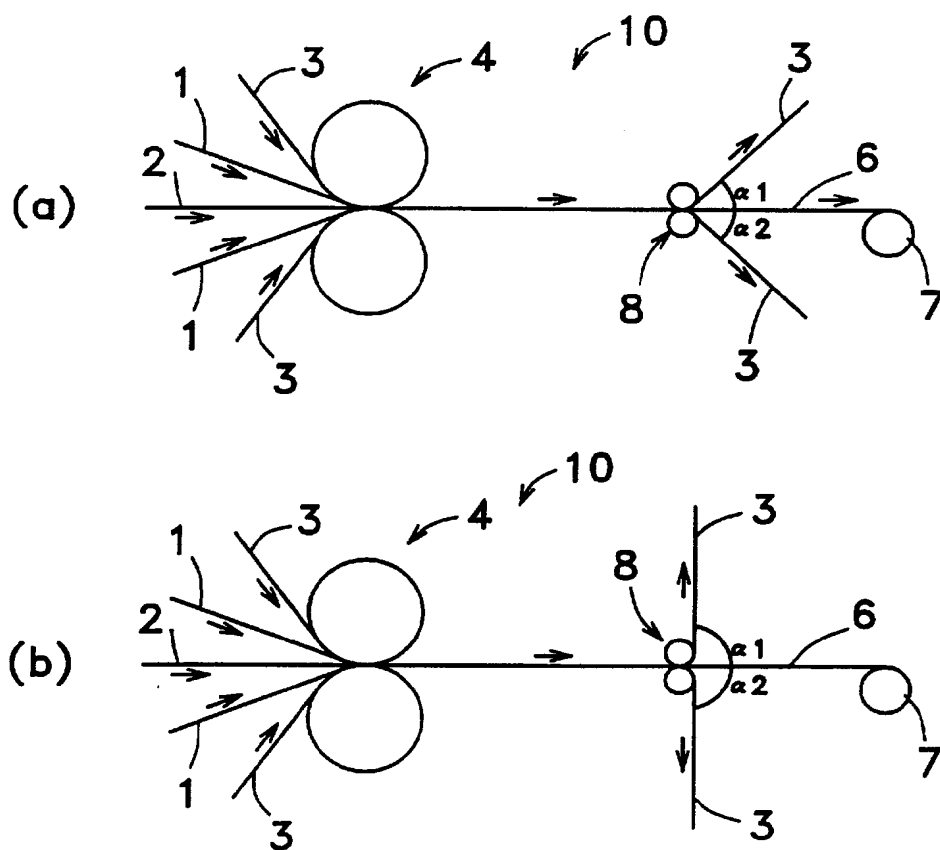
31. 前記金属ロールの直径が200mm以上であることを特徴とする請求項29又は30に記載の加熱加圧成形装置。

32. 前記金属ロールの真円度が0.05mm以下、かつ円筒度が0.05mm以下、表面粗さが0.01mm以下であることを特徴とする請求項29乃至31のいずれかに記載の加熱加圧成形装置。

33. 前記金属ロール面長方向の温度差が±10℃以下であることを特徴とする請求項29乃至32のいずれかに記載の加熱加圧成形装置。

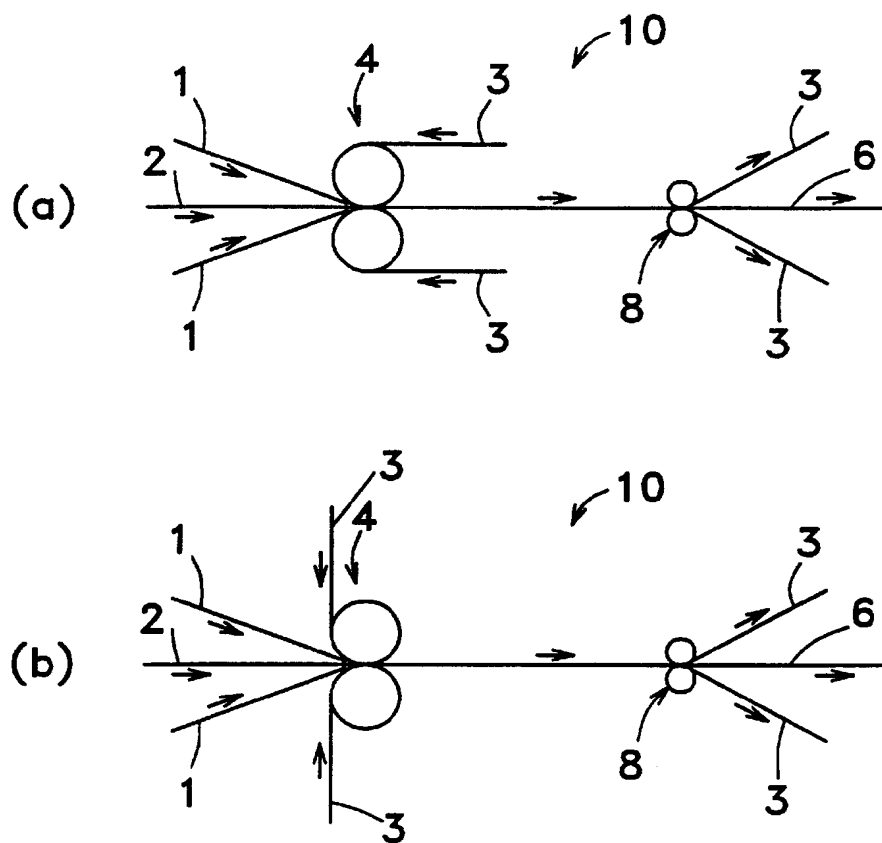
34. 前記金属ロールの表面硬度がHs50以上であることを特徴とする請求項29乃至33のいずれかに記載の加熱加圧成形装置。

## 第 1 図

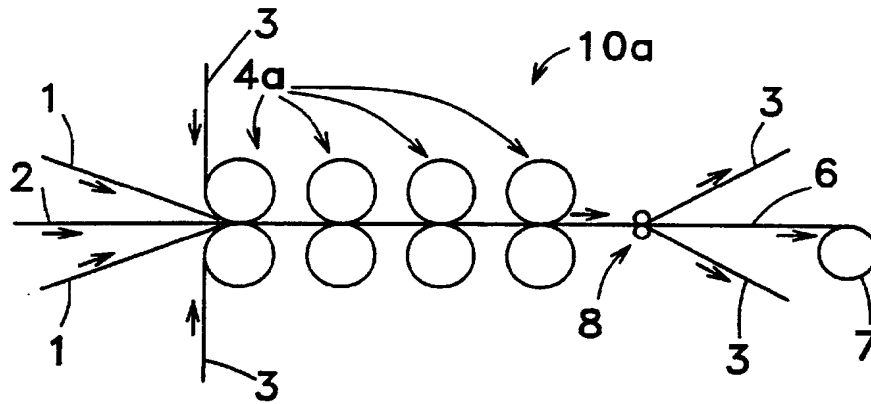




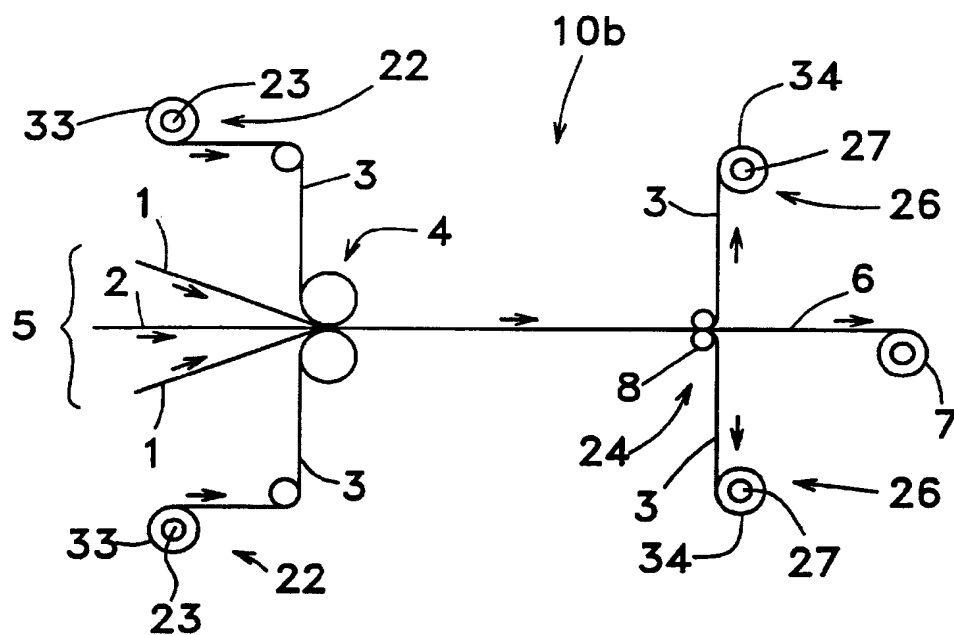
# 第 3 図



## 第 4 図



第 5 図



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/07656

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> B32B31/20 , B32B15/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl.<sup>7</sup> B32B31/20 , B32B15/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 62-13336, A (OILES CORPORATION), 22 January, 1987 (22.01.87), entire description (Family: none)	1-34
A	JP, 2-63816, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 05 March, 1990 (05.03.90), entire description (Family: none)	1-34
A	JP, 11-291391, A (Mitsui Chemicals, Ltd.), 26 October, 1999 (26.10.99), entire description (Family: none)	1-34

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
22 January, 2001 (22.01.01)

Date of mailing of the international search report  
30 January, 2001 (30.01.01)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/07656

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl.<sup>7</sup> B32B31/20、B32B15/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> B32B31/20、B32B15/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 62-13336, A (オイレス工業株式会社), 22. 1月. 1987 (22. 01. 87), 全文献 (ファミリーなし)	1-34
A	JP, 2-63816, A (日立化成工業株式会社), 5. 3月. 1990 (05. 03. 90), 全文献 (ファミリーなし)	1-34
A	JP, 11-291391, A (三井化学株式会社), 26. 10月. 1999 (26. 10. 99), 全文献 (ファミリーなし)	1-34

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリ

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22. 01. 01

国際調査報告の発送日

30.01.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

鴨野 研一

印

4S

7148

電話番号 03-3581-1101 内線 3430